DOI: 10.5846/stxb201604110665
邢建伟, 宋金明, 袁华茂, 李学刚, 李宁, 段丽琴, 王启栋, 左九龙.胶州湾夏秋季大气湿沉降中的营养盐及其入海的生态效应.生态学报,2017,37(14):4817-4830.
Xing J W, Song J M, Yuan H M, Li X G, Li N, Duan L Q, Wang Q D, Zuo J L.Nutrients in atmospheric wet deposition and their ecological effects on Jiaozhou Bay in summer and autumn 2015.Acta Ecologica Sinica,2017,37(14):4817-4830.

胶州湾夏秋季大气湿沉降中的营养盐及其入海的生态效应

邢建伟[1,2], 宋金明[1,3,*], 袁华茂[1,3], 李学刚[1,3], 李 宁[1,3], 段丽琴[1,3], 王启栋[1,2], 左九龙[1,2]

1 中国科学院海洋研究所, 海洋生态与环境科学重点实验室, 青岛 266071
2 中国科学院大学, 北京 100049
3 青岛海洋科学与技术国家实验室,海洋生态与环境科学功能实验室, 青岛 266237

摘要:为揭示大气湿沉降对胶州湾营养盐的输送通量及其生态效应,分别于 2015 年 6—8 月(夏季)、9—11 月(秋季)采集胶州湾降水样品,测定了降水中不同形态 N、P、Si 的浓度。结果表明,降水中不同形态营养盐的浓度变化较大,且均与降水量呈负相关关系,其中 NH_4-N 和 NO_3-N 的浓度较高,溶解有机氮(DON)占溶解态总氮(DTN)含量的 25.9%,而 NO_2-N, PO_4-P 和 SiO_3-Si 的浓度均很低。溶解无机氮(DIN)、DON、PO_4-P 以及 SiO_3-Si 的湿沉降通量分别为 141.7、61.87、0.35 mmol m^{-2} a^{-1}和 0.12 mmol m^{-2} a^{-1}。受降水量和营养物质来源制约,各项营养盐湿沉降通量时间变化显著。农业活动导致的无机氮排放构成了胶州湾湿沉降 DIN 的主要来源。大气湿沉降 DIN、DON、PO_4-P 和 SiO_3-Si 分别占胶州湾总输入负荷的 9.04%、10.24%、0.57%和 0.17%,湿沉降输入的 PO_4-P 在夏、秋季分别可以支持 0.575 mg C m^2 d^{-1}和 1.42 mg C m^2 d^{-1}的新生产力;雨水中 DIN/P 比值高达 1 617,突发性强降雨带来的营养盐输入会加剧表层水体的 P 限制和 Si 限制,对胶州湾浮游植物群落结构和粒级结构产生重要影响。大气湿沉降是胶州湾生源要素生物地球化学过程的重要一环,对营养物质收支的贡献及可能引发的生态效应不容忽视。

关键词:营养盐;大气湿沉降通量;生态效应;胶州湾;夏季;秋季

Nutrients in atmospheric wet deposition and their ecological effects on Jiaozhou Bay in summer and autumn 2015

XING Jianwei[1,2], SONG Jinming[1,3,*], YUAN Huamao[1,3], LI Xuegang[1,3], LI Ning[1,3], DUAN Liqin[1,3], WANG Qidong[1,2], ZUO Jiulong[1,2]

1 *Key Laboratory of Marine Ecology and Environmental Sciences, Institute of Oceanology, Chinese Academy of Sciences, Qingdao* 266071, *China*
2 *University of Chinese Academy of Sciences, Beijing* 100049, *China*
3 *Function Laboratory of Marine Ecology and Environmental Sciences, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao* 266237, *China*

Abstract: Recently, owing to anthropogenic activities such as fossil fuel combustion and agricultural fertilization, the amounts of nutrients and other pollutants entering the marine environment via atmospheric wet deposition have been increasing. Large amounts of nutrients input resulting from short-term heavy rainfall may result in the temporary eutrophication of surface waters, and could even lead to red tides. Therefore, research has presently been focused on

基金项目:国家重点基础研究 973 项目课题(2015CB452901); 青岛海洋国家实验室鳌山卓越科学家人才专项(2015ASTP-OS13); 国家自然科学基金委—山东省联合基金(U1406403)

收稿日期:2016-04-11; **网络出版日期**:2017-03-02

* 通讯作者 Corresponding author.E-mail: jmsong@ qdio.ac.cn

atmospheric wet deposition. Jiaozhou Bay, North China, is a typical semi-closed bay negatively affected by natural changes and anthropogenic activities. With the rapid development of the economy, society, and the population growth of Qingdao City, anthropogenic activities have resulted in ecological environmental deterioration, such as frequent occurrence of smog and sandstorms. This has resulted in a considerable increase in the transfer rate of terrigenous pollutants into the sea via atmospheric wet deposition. Thus, research on the nutrients of atmospheric wet deposition in Jiaozhou Bay has received considerable attention from governments, society, and scientists. To evaluate the nutrients influxes by atmospheric wet deposition and their ecological effects on Jiaozhou Bay, 33 wet deposition samples were collected in Jiaozhou Bay from June to November 2015. The concentrations of nutrients (NH_4-N, NO_3-N, NO_2-N, PO_4-P, and SiO_3-Si), dissolved total nitrogen (DTN), and dissolved organic nitrogen (DON) were determined using a continuous flow analyzer. Results showed significant differences among the monthly average concentrations for nutrients, and negative relationships between several nutrients and the amount of precipitation. The concentrations of NH_4-N and NO_3-N in the rainwater were high, whereas the concentrations of NO_2-N, PO_4-P and SiO_3-Si were low. Dissolved inorganic nitrogen (DIN) was the dominant species, accounting for 74.1% of DTN with DON accounting for 25.9% of DTN. The wet deposition fluxes of DIN, DON, PO_4-P and SiO_3-Si were estimated as 141.7 mmol m^{-2} a^{-1}, 61.87 mmol m^{-2} a^{-1}, 0.35 mmol m^{-2} a^{-1}, and 0.12 mmol m^{-2} a^{-1}, respectively. Temporal variations of the wet deposition fluxes of nutrients were evident, since they were affected by the amount of precipitation and the origin of nutrients. Significantly positive correlations were observed among different nitrogen forms (except for DON), suggesting that they had the same origin. The emission of inorganic nitrogen from agricultural activities was the main source of the DIN wet deposition in Jiaozhou Bay. The fluxes of DIN, DON, PO_4-P and SiO_3-Si by atmospheric wet deposition accounted for 9.04%, 10.24%, 0.57%, and 0.17% of the total external influxes of Jiaozhou Bay, respectively. The total influxes of PO_4-P via atmospheric wet deposition in summer and autumn could support new productivities of 0.575 mg C m^{-2} d^{-1} and 1.42 mg C m^{-2} d^{-1}, respectively. The average molar ratio of DIN/P in the rainwater was 1,617, which was well above that in the seawater of Jiaozhou Bay, indicating that large amounts of nutrients inputs from sudden heavy rainfall could aggravate the P and Si limitation and further affect the nutrient structures of surface waters, as well as phytoplankton community structures and size-fractioned structures in Jiaozhou Bay. As one of the essential branches of the biogeochemical cycle of biogenic elements, the contribution of atmospheric wet deposition to the nutrient budgets and possible potential ecological effects on Jiaozhou Bay ecosystem cannot be neglected

Key Words: nutrients; fluxes of atmospheric wet deposition; ecological effects; Jiaozhou Bay; summer; autumn

大气湿沉降是气溶胶及其中所含元素随自然界发生的雨、雪等降水形式沉降至地表及水体表面的过程。对海洋生态系统来讲,湿沉降中含有浮游植物生长所必需的 N、P、Si 等生源要素,是陆源营养物质输送入海的重要途径之一,也是生源要素海洋生物地球化学循环的一个重要环节[1-2],短时突发性强降雨带来的营养物质大量输入可能会导致表层海水的暂时富营养化,并可引起赤潮的发生[3-4]。因此,湿沉降带来的生源要素输入及其入海的生态效应一直是国内外研究的热点[2,5-7]。从全球尺度上看,N 的大气沉降量通常等于或大于河流向海洋的输入量[8],Zhang[3] 研究发现大气湿沉降分别占黄海溶解无机氮(DIN)和溶解无机磷(DIP)输送量的 65%和 70%。在新加坡滨海下游区域,N 的湿沉降占总氮(TN)输入量的 70%以上[9],这些都表明大气湿沉降是海洋 N、P 营养盐的主要来源之一。黄海和东海降水中 5 种营养盐组分的浓度呈现 NH_4-N >NO_3-N>SiO_3-Si>NO_2-N>PO_4-P 的规律,雨水的 N/P 摩尔比值在东海和黄海分别为 1319 和 394,均远远高于海水中的 N/P 比值(20—80)和 Redfield 比值,表明突发性的大气降水可以短时显著改变黄、东海表层海水的营养盐结构,进而对初级生产力及浮游植物群落结构造成显著影响[10]。

胶州湾位于山东半岛东南,黄海西岸,为青岛市区、胶州市以及国家级青岛西海岸新区环绕,面积 374.4 km^2,平均水深 7 m,仅在东南角通过一个狭窄的湾口与黄海相通。胶州湾生态系统既受到东亚季风和黄海冷

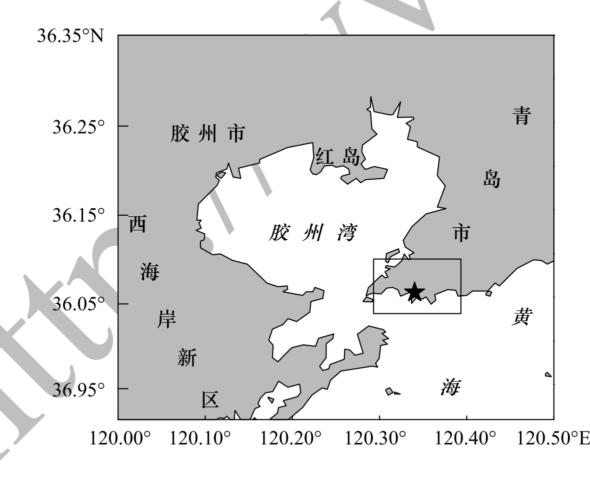
水团等自然因素的影响,同时也受到沿岸日益增强的人类活动如陆源物质排放、海水养殖等的影响[11],是我国北方一个受自然变化和人类活动双重影响的典型半封闭型海湾。近几十年来,受青岛市经济社会迅猛发展、人口激增以及雾霾和沙尘天气频发等多种人文和自然因素的共同影响,大气沉降在陆源污染物质向胶州湾输送过程中的作用日益凸现。特别是近年来,随着青岛市"环湾保护,拥湾发展"发展战略的深入实施,胶州湾入海河流径流量及输沙量降低,工农业废水和生活污水排放逐步得到治理。相对河流输入和沿岸非点源污染排放,大气沉降,特别是湿沉降在胶州湾营养盐负荷中所占比重势必会增大。因此,胶州湾大气湿沉降的研究日益受到人们的重视。然而目前有关胶州湾大气沉降营养盐通量及入海生态效应的研究还非常少,且不成系统,而湿沉降方面的研究就更少了。

为深入了解大气湿沉降对胶州湾海洋生态系统营养盐输入的贡献及效应,本研究通过岸基站位定点收集胶州湾 2015 年 6—11 月份的大气湿沉降样品,系统分析了降水中溶解无机态营养盐(NO_3-N、NO_2-N、NH_4-N、PO_4-P、SiO_3-Si)和溶解有机氮(DON)的浓度、变化、沉降通量、来源及其影响因素,在此基础上剖析了大气湿沉降营养盐的输入对胶州湾生态系统的影响,研究结果可为揭示胶州湾海—气界面化学物质交换过程及通量,量化大气湿沉降对胶州湾营养物质收支的贡献及影响,以及进一步阐明胶州湾这一受人为活动影响显著海域生源要素的生物地球化学循环过程提供数据支持和理论依据。

1　材料与方法

1.1　样品采集与分析

在青岛市市南区海边近岸的南海路 7 号中国科学院海洋研究所水族楼楼顶(36°03′19.46″N,120°20′25.11″E)进行湿沉降样品的采集(图 1)。该站点位于胶州湾外南黄海山东半岛南岸沿岸,距高潮水位岸线直线距离 20 m。采样点距地面垂直高度 15 m,通风良好,周围 100 m 内无高大建筑物及局部污染源影响。使用 DH-200 型降雨降尘自动采样器(青岛盛鼎环境仪器有限公司)收集降水样品,该仪器采样可以实现完全自动化运行,无需人员值守,且性能稳定,取样操作简单,完全满足采样要求。采样过程中逢雨必采,若 24 h 降水量小于 0.5 mm,则舍弃;24 h 降水量大于 0.5 mm,则使用聚乙烯瓶(预先经 1∶10 盐酸浸泡 3 d,依次使用自来水、去离子水和 Milli-Q 水洗净后烘干)收集,同时记录降水量。采样期间共收集了 33 个湿沉降样品。为研究湿沉降营养盐浓度随降水时间的动态变化过程,分别于 2015 年 8—11 月分时间段收集了 13 个连续降雨样品。



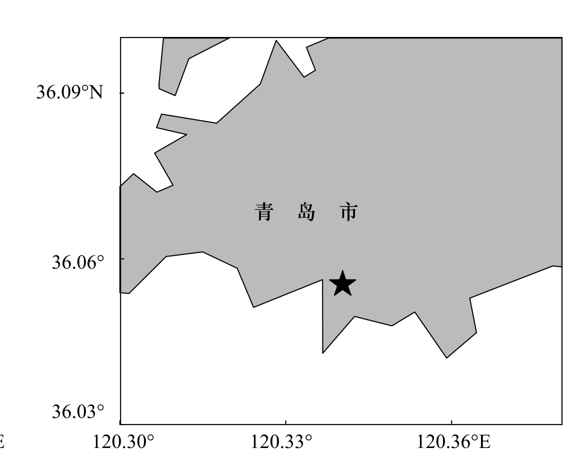


图 1　大气湿沉降采样站点(图中★所示)

Fig.1　Sampling site for atmosphere wet deposition in the Jiaozhou Bay (★represents the sampling site)

收集的雨水样品用 0.45 μm 醋酸纤维膜(预先经 pH=2 的盐酸浸泡 24 h,Milli-Q 水洗至中性,50℃下烘干)过滤,滤液-20 ℃冷冻保存,并尽快上机分析。使用德国产 QuAAtro 连续流动分析仪测定 5 项营养盐(NO_3-N、NO_2-N、NH_4-N、PO_4-P、SiO_3-Si)。溶解态总氮(DTN)采用过硫酸钾高温氧化法消解后上机测定。全

部测定过程中均进行质量控制(表 1),根据公式 DIN=(NH_4-N)+(NO_3-N)+(NO_2-N),DON=DTN−DIN 差减计算得出。

表 1 营养盐测定方法及质量控制

Table 1 Determination methods of nutrients and quality control

营养盐 Nutrients	测定方法 Measurement method	精密度/% Precision	检出限/(μmol/L) Detection limit
NH_4-N	水杨酸钠法	2.71	0.25
NO_3-N	Cd-Cu 还原法	1.34	0.15
NO_2-N	盐酸-萘乙二胺比色法	1.81	0.01
PO_4-P	磷钼蓝法	2.04	0.01
SiO_3-Si	硅钼蓝法	2.81	0.01

1.2 数据处理方法

降水中营养盐的平均浓度是指降水量的加权平均值。营养盐的降水量加权平均浓度及沉降通量的计算方法如下[12]:

$$C_{VWM} = \sum_{i=1}^{n} (C_i \times Q_i) / \sum_{i=1}^{n} Q_i \tag{1}$$

$$F_W = \sum_{i=1}^{n} C_i \times Q_i \tag{2}$$

式中,C_{VWM}代表一定时间内降水中营养成分的降雨量加权平均浓度(VWM)(μmol/L),n 为一定时间内的降水次数,C_i为单次降水中的营养盐浓度(μmol/L),Q_i为单次降水量(mm);F_W为湿沉降通量(μmol/m^2)。

本研究中所有数据的统计分析借助于 SPSS 16.0 软件进行,图片利用 Surfer 8.0 和 Origin 8.0 软件绘制。

2 结果与讨论

2.1 样品采集期间降水量

观测期间胶州湾的总降水量为 625.5 mm,由于没有计入春、冬季降水量数据,因而与胶州湾地区年平均总降水量 745 mm 相比较小[13]。历次降水量变化趋势如图 2 所示。从图中可以看出,各次降雨的降水量差异显著。观测期间共发生降水量超过 30 mm 的降水 7 次,其中 6、7、8 月份各有 1 次,而 9 月和 11 月各有 2 次。夏季(6—8 月)、秋季(9—11 月)总降水量分别为 256.5 mm 和 369.0 mm。秋季降水量占比(59.0%)显著高于夏季(41.0%),可见 2015 年胶州湾降水主要集中在秋季,特别是 11 月份,高达 178.5 mm。而往年胶州湾降水集中在夏季的 7、8 月份,这 2 个月的降水量几乎可占全年的一半[13-14]。2015 年是强厄尔尼诺年,可能是该事件引发的气候反常导致了胶州湾 2015 年与往年降水量季节分配的差异。

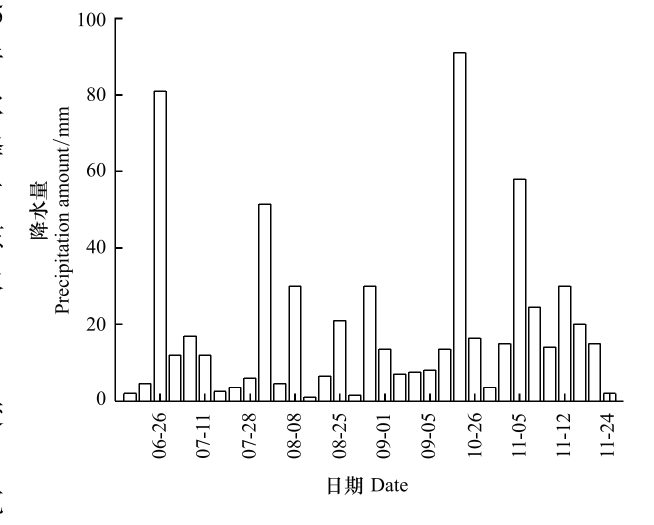


图 2 胶州湾 2015 年夏秋季降水量的变化

Fig.2 Variation of precipitation in Jiaozhou Bay in summer and autumn 2015

2.2 降水中营养盐的水平与变化

2.2.1 降水中不同形态营养盐的浓度水平、结构与变化特征

胶州湾 2015 年夏秋季雨水中各项营养盐的浓度范围和雨量加权平均浓度见表 2。从中可以看出,NH_4-N 和 NO_3-N 在湿沉降中的浓度较高,其中 NH_4-N 可占 DIN 浓度的 64.8%,(NO_3-N+NO_2-N)占 35.2%,与胶州

湾 2009—2010 年的调查结果相当[14],同时与朱玉梅等在东海的观测结果较为相似[15];DON 加权浓度均值可占 DTN 的 25.9%,与之前的研究结果相比差别不大[16-17],表明胶州湾雨水中各形态 N 营养盐的整体来源和组成较为稳定。且胶州湾雨水中 DON 占 DTN 的比例与青岛沿海大气气溶胶中 DON 占 DTN 的比例(22%)相当[14],暗示雨水中的 N 主要来自于对气溶胶中含 N 粒子的冲刷和淋溶。胶州湾降水中五种营养盐的浓度均值呈现 NH_4-N>NO_3-N>NO_2-N>PO_4-P>SiO_3-Si 的特征,与黄、东海略有差异[10]。与 N 相比,雨水中 PO_4-P 和 SiO_3-Si 的浓度很低,加权浓度均值分别仅 0.23 μmol/L 和 0.12 μmol/L。由图 3 也可以看出,胶州湾降水中 NH_4-N 和 NO_3-N 构成了 N 营养盐的主体,且各个月份中 NH_4-N 浓度均高于 NO_3-N,这与长江口[4,18]以及中国多数沿海地区降水中 DIN 的组成相似[19]。

表 2　2015 年夏秋季胶州湾大气湿沉降营养盐浓度

Table 2　Concentrations of nutrients in atmospheric wet deposition in Jiaozhou Bay in summer and autumn 2015

时间 Time	项目 Item	营养盐浓度 Concentrations of nutrients/(μmol/L)							
		NH_4-N	NO_3-N	NO_2-N	DIN	DON	DTN	PO_4-P	SiO_3-Si
夏季 Summer	范围	37.95—1524	24.28—1430	0.01—5.37	64.12—2959	9.30—330.7	124.2—3290	0.04—2.29	未检出—1.28
	VWM	161.5	86.05	0.575	248.1	67.37	315.5	0.16	0.10
秋季 Autumn	范围	13.09—323.6	0.48—138.4	未检出—0.71	12.33—399.2	10.31—132.1	44.88—449.1	0.08—0.82	未检出—0.42
	VWM	74.26	41.19	0.089	115.4	53.77	169.2	0.27	0.13
整体 Total	范围	13.09—1524	0.48—1430	未检出—5.37	12.33—2959	9.30—330.7	44.88—3290	0.04—2.29	未检出—1.28
	VWM	110.0	59.58	0.290	169.8	59.35	229.2	0.23	0.12

VWM:雨量加权平均浓度 Volume-weighted mean;DIN:溶解无机氮 Dissolved Inorganic NitrogenDON:溶解有机氮 Dissolved Organic Nitrogen;DTN:溶解态总氮 Dissolved Total Nitrogen

由图 3 可以看出,降水中不同形态营养盐的月均浓度变化非常明显。NH_4-N、NO_3-N、NO_2-N 和 DIN、DON 以及 DTN 随降水量的变化趋势非常相似,均呈现出先升高、后降低、又升高、再降低的波浪双峰型变化趋势。除 DON 和 PO_4-P 外,其它各项营养盐均在 7 月和 10 月出现两个极高值,其中 NH_4-N 和 NO_3-N 的最高浓度分别达最低浓度的 4 倍和 3 倍,不同于以往的研究结果[20],可能与这两个月份降水量较少有关。将各项营养盐浓度与降水量进行相关性分析,结果显示,各项营养盐浓度与降水量之间均呈现不同程度的负相关关系(相关系数在-0.010—-0.350 之间),从而支持了这一推断。降水中 PO_4-P 和 SiO_3-Si 的浓度均很低,变化也相对平稳。相关的研究表明,大气 P 和 Si 的主要来源均为矿物沙尘[15,21-22],而 P 还有一部分来自于燃烧过程中释放的烟尘[23]。本研究的调查季节为夏、秋季,胶州湾盛行东南风,基本没有受到来自西北的沙尘天气以及冬季燃煤供暖的影响,因而雨水中较低的 PO_4-P 和 SiO_3-Si 浓度可能与二者在调查期间的来源较少有关。研究表明,降水中的营养盐浓度不仅与降水量有关,还取决于大气气溶胶粒子的浓度[15,24],这从上文雨水和气溶胶中无机/有机氮的含量比例相似也可以得到证实,而大气气溶胶粒子的浓度同时受到污染物来源[15]以及风向、风速等气象因素的制约[25-28]。调查期间 8 月份的主导风向为东南偏南风,来自南黄海的海洋气溶胶对胶州湾大气颗粒物的浓度造成了一定的稀释,因而虽然 8 月份的降水量也较低,但雨水中各项营养盐的浓度却并没有出现极高值。此外,胶州湾 2015 年秋季降水量显著高于夏季,因此,秋季降水中 N 营养盐浓度均值普遍低于夏季,而 PO_4-P 和 SiO_3-Si 与之相反(表 2),可能是秋季受到西北地区沙尘的远距离输送以及局地排放源(如农作物秸秆焚烧以及大风引起的土壤扬尘等)增强的缘故[16-17]。

为进一步研究连续性降雨条件下,降水中营养盐浓度随降水持续时间的动态变化规律,分别于 2015 年 6 月 25—26 日,7 月 17—19 日,8 月 6—8 日,9 月 1 日 2:30—15:30,10 月 26 日 5:30—22:30 以及 11 月 4 日 19:50—6 日 10:40 分时段收集降水样品 13 个,测定各项营养盐的浓度,结果见表 3。

从表 3 可以看出,各类营养盐大体上呈现出降水后期浓度低于前期的特征,如 7 月份的连续降雨中,前、后期降水量相当,但后期降水中除 DON 外,其它各项营养盐浓度均出现显著降低,特别是在前期降水量较小而后期降水量较大的情况下,后期降水中营养盐浓度会呈现迅猛降低的趋势,此现象在 8 月和 11 月的两次降

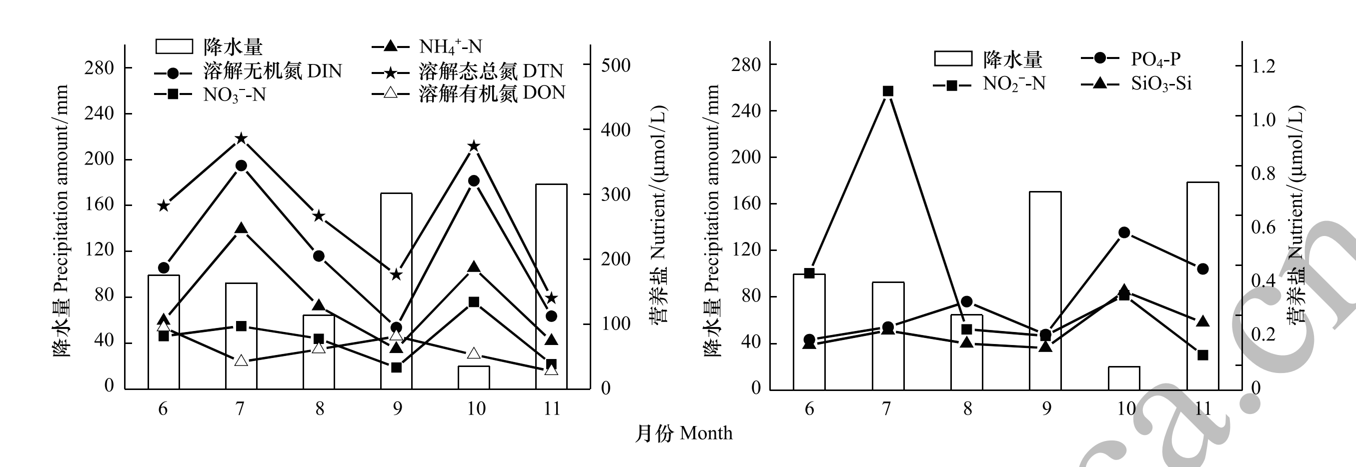


图 3 胶州湾夏秋季湿沉降营养盐浓度的月际变化

Fig.3 Monthly variation of average nutrients concentrations of atmospheric wet deposition in Jiaozhou Bay in summer and autumn 2015

DIN:溶解无机氮,Dissolved Inorganic Nitrogen;DON:溶解有机氮,Dissolved Organic Nitrogen;DTN:溶解态总氮,Dissolved Total Nitrogen

水事件中表现尤为明显。这表明随着降雨的持续,雨水对气溶胶中营养元素的不断冲刷和淋溶,使得气溶胶中相应离子的浓度越来越低,最终导致后期降水中营养成分的浓度呈现逐渐降低的趋势,进一步证明降水中营养盐的浓度与降水量以及气溶胶中相应营养盐成分的浓度密切相关。然而雨水中营养盐浓度还受到云内雨除及其它气象条件等的综合制约[28],机制比较复杂,部分后期降水样品中营养成分浓度高于前期降水,其中的原因还需要进一步的研究揭示。

表 3 连续降水中不同时间段营养盐的含量

Table 3 Contents of nutrients in different time of the continuous rains

时间 Time	降水量/mm Precipitation amount	降水类型 Precipitation type	营养盐浓度 Concentrations of nutrients/(μmol/L)							
			NH_4-N	NO_3-N	NO_2-N	DIN	DON	DTN	PO_4-P	SiO_3-Si
6 月 June	4.5	小雨	66.79	186.4	0.01	253.2	41.45	294.6	0.43	0.62
	81.0	暴雨	33.95	31.92	0.32	70.18	100.4	170.5	0.04	0.02
7 月 July	2.5	小雨	526.2	415.4	0.04	941.6	29.78	971.4	0.80	0.20
	3.5	小雨	236.5	189.7	0.04	426.2	40.29	466.5	0.37	0.02
8 月 August	4.5	小雨	200.8	232.9	0.04	433.8	9.52	443.3	0.67	0.19
	30.0	大雨	39.83	24.28	0.01	64.12	60.09	124.2	0.07	/
9 月	7.5	小雨	71.16	83.98	0.03	155.2	132.1	287.3	0.18	0.10
September	8.0	小雨	110.9	41.26	0.71	152.9	26.60	179.5	0.10	0.07
10 月 October	16.5	中雨	188.7	138.4	0.33	327.5	60.88	388.4	0.55	0.32
	3.5	小雨	176.2	114.2	0.07	290.4	15.75	306.2	0.44	0.20
11 月	15.0	中雨	323.6	75.58	0.03	399.2	49.89	449.1	0.33	0.14
November	58.0	暴雨	45.92	18.18	/	64.10	10.31	74.40	0.82	0.27
	24.5	中雨	13.09	0.48	/	12.33	32.55	44.88	0.10	0.12

根据中国气象局降雨量等级划分标准划分;表中"/"表示未检出

表 4 列出了不同区域降水中营养盐的浓度。可以看出,与 2009—2010 年[14]、2006—2008 年[17]以及 2004—2005 年[16]夏秋季相比,本研究胶州湾降水中各项无机氮的浓度均明显偏高,而 DON 除与 2006—2008 年秋季大致相当外均明显偏高,表明近年来胶州湾周边大气 N 污染在加剧,而 PO_4-P 和 SiO_3-Si 的浓度与 2004—2005 年相比显著降低,但本研究测得的 PO_4-P 浓度比 2009—2010 年略偏高。同时,胶州湾湿沉降各项 N 营养盐的浓度均明显高于大亚湾[29]、黄海[12]、东海[15]的水平,与长江口[4]相差不大,但远远高于太平洋降水中各项无机氮的浓度[30],大致呈现出沿岸>近海>大洋的变化趋势,进一步证实降水中各项营养盐的浓

度除了受降水量影响外,还受制于气溶胶浓度以及排放源的区域性差异,这主要体现为人为活动的影响。此外,排放到大气中的陆源污染物随气团由大陆向远洋的输送路径也会影响相应区域降水中的离子组成。如姜晓璐通过气团后向轨迹研究发现,青岛地区降水云团大部分来自西北和华北地区,因此胶州湾降水中各项营养盐的浓度必然会在一定程度上受到上述地区风沙和人为污染物的影响[17]。相对而言,胶州湾大气湿沉降中 PO_4-P 和 SiO_3-Si 的浓度显著低于长江口,可能是两地的经济发展水平和自然条件差异造成的。长江三角洲是我国经济最发达的地区,高强度的工业生产导致的工业烟尘的大量排放以及崇明岛农业耕作导致的土壤中磷肥的释放可能是引起降水中 PO_4-P 浓度升高的重要原因。同时,调查期间两地气象条件的差异以及局部污染也可能造成雨水中 SiO_3-Si 含量的变动。

表 4　不同海区降水中的营养盐浓度

Table 4　Concentrations of nutrients in rainwater in different seas

海区 Seas	时间 Time	营养盐浓度 Concentrations of nutrients/(μmol/L)					
		NH_4-N	NO_3-N	PO_4-P	SiO_3-Si	DIN	DON
胶州湾(1) Jiaozhou Bay	2015 夏	161.5	86.05	0.16	0.10	248.1	67.37
	2015 秋	74.26	41.19	0.27	0.13	115.4	53.77
	均值	110.0	59.58	0.23	0.12	169.8	59.35
胶州湾[14] Jiaozhou Bay	2009—2010	54.8	36.3(2)	0.12	5.12	91.1	/
胶州湾[17] Jiaozhou Bay	2006—2008 夏	63.10	23.37(2)	0.20(3)	2.49	86.47	37.30
	2006—2008 秋	63.30	25.32(2)		1.69	88.62	65.00
胶州湾[16] Jiaozhou Bay	2004 夏	64.30	33.84(2)	0.84(3)	2.23	98.14	29.31
	2004 秋	63.90	37.59(2)		4.46	101.49	33.83
大亚湾[29] Daya Bay	2012	33.86	38.29	/	/	73.57	/
黄海[12] The Yellow Sea	2009—2010	64.24	52.42	0.01—9.08	0.75—95.58	1.95—436.0	/
东海[15] The East China Sea	2008—2009	16.50—65.74	9.39—58.54(2)	0.04—0.42	1.08	25.89—115.0	/
长江口[4] Yangtze River Estuary	2004—2005	22.90—222.6	8.02—92.23	0.23—1.34	0.09—0.53	31.05—315.4	/
太平洋[30] The Pacific Ocean	2008—2009	1.70—55.0	0.16—18.0	/	/	/	/

(1)本研究结果;(2)为 NO_3-N 和 NO_2-N 之和;(3)为年均浓度;"/"表示文中无此数据

2.2.2　大气湿沉降营养盐通量及其变化

胶州湾 2015 年各项营养盐湿沉降通量见表 5(由于缺乏春、冬季湿沉降营养盐数据,故参考姜晓璐[17]、朱玉梅[14]的研究结果,取夏秋季 NH_4-N、NO_3-N、DON 以及 PO_4-P 和 SiO_3-Si 的湿沉降通量分别约占全年湿沉降通量的 75%、75%、60%、40%和 60%估算)。可以看出,2004—2015 年胶州湾各形态 N 营养盐湿沉降通量出现较大幅度的增长,其中 2006—2008 年 N、P 营养盐高沉降通量的出现可能与这些年份较高的降水量密切相关;而 PO_4-P 和 SiO_3-Si 通量出现一定程度的降低,尤其是 SiO_3-Si 的降低幅度可达几十倍,表明近十几年来青岛市大气 N 污染(主要为 NH_4-N、NO_3-N、DON 的前体物 NO_x 和 NH_3)有加重的趋势。2015 年夏秋季胶州湾各项营养盐的时间变化如图 4 所示。可以看出,除 DON 外,胶州湾 NH_4-N、NO_3-N、NO_2-N、DIN 以及 DTN 的湿沉降通量均在 7 月份达到最高,而 DON 湿沉降通量在 9 月出现最高值。相应的,各形态 N 的湿沉降通量最低值均出现在 10 月份。同样,PO_4-P 和 SiO_3-Si 的通量最高值均出现在 11 月,而最低值分别出现于 6 月和 8 月。将上述各项营养盐湿沉降通量与降水量进行相关性分析发现,其均与降水量呈现不同程度的线性正相关,相关系数 r 分别为 0.310,0.307,0.388,0.319,0.652,0.874,0.439 和 0.319,表明降水量对各项营养盐的湿沉降通量有较大的促进作用。这是由于降水可以冲刷并淋溶气溶胶中含有营养物质的颗粒,降水量越大,对气溶胶中颗粒物的冲刷越彻底。然而气溶胶中颗粒物的含量是一定的,随着降雨量的不断加大,雨水中营养盐的浓

度会逐渐下降(表 3),进而导致湿沉降通量不能持续呈线性增长。因此,营养盐的湿沉降通量受到雨水中营养盐浓度和降水量的双重制约,导致各项营养盐湿沉降通量月际间呈波浪状变化。

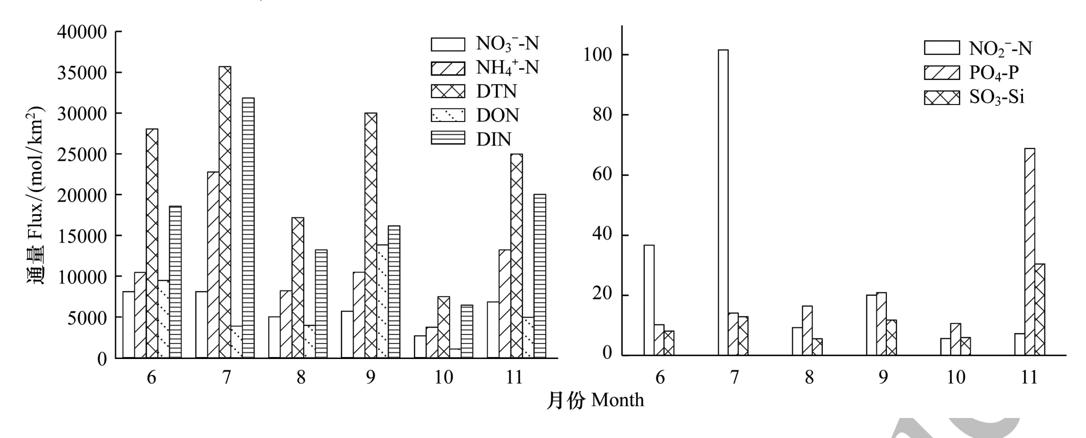


图 4 胶州湾营养盐湿沉降通量月际变化

Fig.4 Monthly variations of atmospheric wet deposition fluxes of nutrients in Jiaozhou Bay

与国内其它海域如长江口[4]、黄东海[12,15]、珠江口[19]、大亚湾[31]相比较(表 5),胶州湾大气 N 湿沉降的通量都处于较高水平。与国外一些海区相比,胶州湾大气 NH_4-N 湿沉降通量分别为 Barnegat Bay[32]和东地中海[33]的 4.9 倍和 13.7 倍,NO_3-N 湿沉降通量分别为上述海区的 1.7 倍和 5.1 倍。而对 PO_4-P,胶州湾与大亚湾[31]相差不大,但显著高于东海[15]和长江口[4]的水平。2015 年胶州湾 SiO_3-Si 湿沉降通量较小,与长江口[4]相差不大,但均比黄海[12]和东海[15]小 1 个数量级。

表 5 胶州湾及其它海区营养盐的湿沉降通量

Table 5 Wet deposition fluxes of nutrients in Jiaozhou Bay and other seas

海区 Seas	时间 Time	降水量/mm Precipitation amount	湿沉降通量 Wet deposition fluxes/(mmol m^{-2} a^{-1})						
			NH_4-N	NO_3-N	PO_4-P	SiO_3-Si	DIN	DON	DTN
胶州湾(1)	2015	625.5	91.76	49.69	0.35	0.12	141.7	61.87	203.6
胶州湾[14]	2009—2010	680.3	28.30	18.80(2)	0.07	2.65	47.10	/	/
胶州湾[17]	2006—2008	942.1	209.3	346.2(2)	3.70	3.30	556.5	240.9	797.4
胶州湾[16]	2004—2005	605.4	53.80	38.80(2)	0.57	3.50	92.60	41.90	134.5
长江口[4]	2004—2005	/	37.29	14.67	0.17	0.10	52.02	/	/
黄海[12]	2009—2010	1167.4	37.49	30.53(2)	0.80	2.14	68.02	/	/
东海[15]	2008—2009	951.0	30.13	21.92(2)	0.08	2.05	52.05	/	/
珠江口[19]	2006—2007	/	47.57	36.29	/	/	83.86	82.27	166.1
大亚湾[31]	2012	1656	68.25	84.51	0.24	/	157.6	/	/
Barnegat bay[32]	1999—2001	/	18.60	29.20	/	/	/	/	/
Eastern mediterranean[33]	2003—2006	/	6.70	9.70	/	/	/	4.80	21.10

(1)本研究数据;(2)为 NO_3-N 和 NO_2-N 之和;“/”表示文中无此数据

图 5 为胶州湾夏秋季营养盐湿沉降通量相对组成。从中可以看出,胶州湾大气湿沉降中 DTN 可占全部营养盐总沉降通量的 99.85%,高于大亚湾 86.34%的水平[29],其中 DIN 和 DON 大致呈现 3:1 的格局,与珠江口横门(DIN:DON=1:1)不同[19],表明 DIN 是胶州湾大气 N 湿沉降的主体,但 DON 的湿沉降通量亦不可忽视。国外的研究结果也发现,不同区域的降水中 DON 可占 DTN 沉降通量的 11%—56%[34],然而以往研究中往往忽略了 DON 的湿沉降,这将会严重低估胶州湾大气 N 湿沉降的输入通量。相比之下,PO_4-P 和 SiO_3-Si 的湿沉降通量所占比例甚微。N 湿沉降通量中,又以 NH_4-N 为主,与长江口[4]以及丹江口水库[35]的观测结

果相似;NO_3-N 和 DON 次之,且二者通量相近,而 NO_2-N 湿沉降通量非常微小。

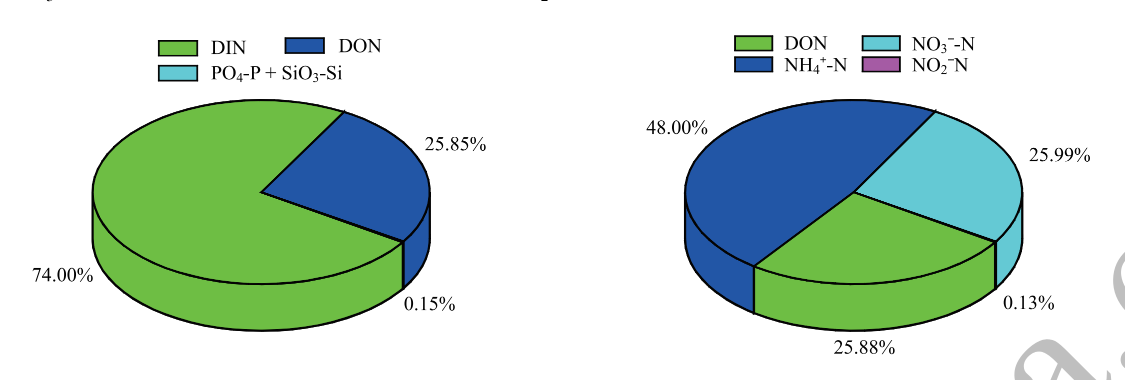


图 5　胶州湾夏秋季营养盐湿沉降通量的相对组成

Fig.5　The relative proportions of wet deposition fluxes of different nutrients in Jiaozhou Bay in summer and autumn 2015

2.3　降水中营养盐来源初步解析

2.3.1　相关性分析

运用 SPSS 16.0 软件将不同形态营养盐之间进行两两 Pearson 相关性分析,来判定不同形态 N、P、Si 的来源是否具有一致性,结果如表 6 所示。各项营养盐之间均呈现极显著正相关,而无机氮之间的相关性更为明显,表明它们可能具有较为一致的来源。PO_4-P 和 SiO_3-Si 之间的相关性也很明显,而 DON 与其它各营养盐成分之间的相关系数均较低,暗示 DON 可能还有其它一些来源。已有的研究表明,大气中的有机氮还来源于生物释放和海洋表层的气泡破碎[36],可能是这些来源导致了 DON 与其它营养盐成分间相关性的差异。

表 6　降水中不同营养盐之间的相关系数矩阵

Table 6　Correlation coefficients matrix of nutrients concentrations in precipitation

参数 Parameters	NH_4-N	NO_3-N	NO_2-N	PO_4-P	SiO_3-Si	DIN	DON	DTN
NH_4-N	1.000							
NO_3-N	0.906**	1.000						
NO_2-N	0.758**	0.745**	1.000					
PO_4-P	0.792**	0.896**	0.590**	1.000				
SiO_3-Si	0.711**	0.784**	0.697**	0.791**	1.000			
DIN	0.980**	0.973**	0.771**	0.861**	0.763**	1.000		
DON	0.555**	0.647**	0.729**	0.513**	0.497**	0.613**	1.000	
DTN	0.971**	0.975**	0.796**	0.856**	0.763**	0.996**	0.679**	1.000

** 示显著性水平 $P<0.01$(双尾),极显著相关; * 示显著性水平 $P<0.05$(双尾),显著相关

2.3.2　NH_4-N/NO_3-N 比值

一般认为,降水中氮含量高低与当地的农业生产活动和经济发展水平密切相关。若采样点靠近工、农业发达的地区,则雨水中 NO_3-N 和 NH_4-N 的含量就高[4]。这从人类活动的角度解释了胶州湾近年来湿沉降氮营养盐逐年升高的主要原因。大气中的 NH_4-N 主要由牲畜粪便和无机氮肥中的 NH_3转化而来[37],而 NO_3-N 则主要来自于工业中化石燃料的燃烧[38]。研究表明若雨水中 NH_4-N/NO_3-N>1,则表示该区域农业排放源占主导地位;反之,则表示该地区大气中氮盐主要源自于工业排放[39-40]。

本研究中胶州湾夏季湿沉降 NH_4-N/NO_3-N 均值为 1.7,秋季均值为 3.3,与 2004—2005 年 NH_4-N/NO_3-N 均值 1.6 相比偏高[16],但均大于 1,表明来自于农业生产导致的无机氮排放构成了胶州湾大气湿沉降 DIN 的主要来源。秋季 NH_4-N/NO_3-N 高于夏季,可能与秋季风大,导致氮肥颗粒/蒸发物向空中转移增加有关,同时秋季也是农田大量增施肥料的重要季节的缘故。

2.4 胶州湾大气湿沉降营养盐负荷及对海湾生态系统的影响

2.4.1 胶州湾大气湿沉降营养盐负荷

胶州湾面积较小,水深较浅,仅通过东南部一个狭小的湾口与黄海相通。大气沉降输入的营养物质无疑将会增加胶州湾的营养盐负荷。为阐明通过湿沉降输入的营养盐总量在胶州湾营养盐总外源输入中的作用,将表5中估算的湿沉降通量乘以胶州湾实际面积计算出湿沉降负荷,并与陆源输入(此处主要指河流输入和陆源排污口污水输入,下同)和海水养殖的输入负荷对比,估算大气湿沉降对胶州湾营养盐总外源输入量的贡献(表7)。

由表7可以看出,胶州湾大气湿沉降各项营养盐负荷在胶州湾总外源输入负荷中的比重均较低,而其中PO_4-P和SiO_3-Si的大气湿沉降负荷极低,与孙松等[13]的估算结果(大气总沉降P负荷占比低于1%)相同,在总输入负荷中几乎可以忽略不计,表明胶州湾N、P、Si营养盐均主要来自于陆源输入,但DIN和DON的大气湿沉降对胶州湾N营养盐负荷也有一定的贡献。本研究中DIN的大气湿沉降量在胶州湾总外源输入中的负荷约为孙松等估算结果(大气沉降占胶州湾DIN入海总通量的6%,此处为干、湿沉降总量)的1.5倍[13],但由于本研究没有考虑干沉降,因而实际的大气干、湿总沉降对胶州湾DIN总负荷的贡献会明显高于6%,这也从一个侧面反映出大气沉降对胶州湾营养盐负荷的整体贡献在增大。

表7 胶州湾大气湿沉降与陆源输入营养盐负荷

Table 7 Nutrients loads of wet deposition and terrestrial inputs in Jiaozhou Bay

营养盐 Nutrients	湿沉降负荷 Wet deposition load/(mol/a)	陆源输入负荷 Terrestrial inputs load/(mol/a)	海水养殖污染负荷 Sea pollution load/(mol/a)	湿沉降占总外源输入负荷百分比 Wet deposition percentages in the total input loads/%
DIN	5.30×10^7	5.19×10^8	1.47×10^7	9.04
DON	2.32×10^7	2.03×10^8	/	10.24
PO_4-P	1.32×10^5	2.18×10^7	1.16×10^6	0.57
SiO_3-Si	4.65×10^4	2.67×10^7	/	0.17

陆源数据引自杨南南[41]和王刚[42],海源负荷引自孙松等[13],其中SiO_3-Si仅河流输入,数据来自刘洁等[43];/表示文中无此数据,计算时暂不予考虑

2.4.2 胶州湾湿沉降营养盐入海的生态效应

上述研究已经证明,大气湿沉降可以为胶州湾带来大量的营养物质输入,是陆源N营养盐输入胶州湾的重要途径之一。胶州湾面积374.4 km^2,假设降水对海水营养盐短期内只影响到表层2 m的范围,则采样期间各次湿沉降营养盐输入对胶州湾表层水体营养盐的加富效应见表8。从中可以看出,大气湿沉降对胶州湾表层水体各形态N营养盐均有一定的加富作用,其中对NH_4-N的加富贡献率最大,可以达到13.0%,其次是DIN,而对PO_4-P和SiO_3-Si的加富作用非常微小,几乎可以忽略不计。以本调查期间夏季一次突发的强降雨为例:2015年7月31日,胶州湾发生短时强降雨,1 h内降雨量高达51.5 mm,由此带来的湿沉降营养盐输入可使胶州湾表层海水DIN、PO_4-P和SiO_3-Si的浓度分别上升19.26%、1.20%和0.02%。王伟研究了台风"达维"带来的强降雨对胶州湾生源要素的补充作用,发现降雨后1d胶州湾实测DIN、PO_4-P和SiO_3-Si浓度较降雨前分别提高54.80%、127.3%和144.6%[44],显著高于本研究,推测PO_4-P和SiO_3-Si浓度的显著升高可能与降水形成的陆地径流的大量输入有关。在厦门海域的研究也发现,台风"碧利斯"的直接湿沉降带来的营养盐的输入对台湾海峡西部表层海水NO_3-N、NH_4-N、DIN的加富量分别达2.6、1.4 μmol/L和4.03 μmol/L,对九龙江口、同安湾以及台湾海峡西部表层海水的DIN的增加幅度分别高达12%、20%和136%[45]。此外,降水对热带西太平洋海水中的N、P也有一定的补充作用[46]。这些都表明强降雨会在短时间内对相关海域的营养盐水平产生强烈的加富效应。受制于狭窄湾口对湾内外水体交换的阻碍作用,胶州湾湿沉降带来的大量营养盐很难及时输送到湾外,且降水中的无机氮浓度均远高于水体富营养化阈值[47],因此湿沉降特别是突发性强降雨带来的营养盐尤其是无机氮的短时大量输入会使胶州湾水体面临富营养化的风险。

表 8　夏秋季大气湿沉降对胶州湾营养盐浓度的加富作用

Table 8　The enrichment effects of atmospheric wet deposition on the concentrations of nutrients in Jiaozhou Bay in summer and autumn 2015

营养盐 Nutrients	湿沉降平均加富浓度/(μmol/L) Enrichment of wet deposition	胶州湾海水浓度均值(1)/(μmol/L) Average concentrations of nutrients in the Jiaozhou Bay	湿沉降对营养盐现存量的贡献/% Contribution of wet deposition to nutrients concentrations
NH_4-N	1.04	8.00	13.0
NO_3-N	0.56	11.50	4.87
NO_2-N	0.0027	1.36	0.20
DIN	1.61	21.60	7.45
DON	0.56	17.11	3.27
PO_4-P	0.0021	0.30	0.70
SiO_3-Si	0.0011	7.00	0.02

(1)胶州湾海水营养盐浓度数据分别来自康美华[48]和丁东生等[49]

孙松等[13]总结了胶州湾浮游植物丰度的长期变化,发现 2001—2010 年浮游植物数量增长明显,为上世纪 90 年代浮游植物平均数量的 6.5 倍,主要与营养盐的输入增加有关。而作为胶州湾营养物质重要来源之一的大气湿沉降必然也在一定程度上加速了这一进程。研究发现,降水可以刺激海水中浮游植物的快速增长,主要与湿沉降带来的营养盐输入有关[3,50-51]。浮游植物主要优先利用水体中的 NH_4-N,而胶州湾降水中以 NH_4-N 为主的营养盐结构无疑又促进了这一进程。据报道,海洋中的浮游生物对湿沉降中的营养元素响应迅速,初级生产力在降水发生后会迅速提高[3,50]。而且降水中含有的 Fe、Mn 等微量元素也会促进浮游植物的生长[52]。如 Zou 等[51]在黄海通过现场添加雨水实验发现,加入 10%的雨水后,培养瓶中叶绿素 a 的含量在 24 h 后增加了 2.6 倍,证明了降水对水体浮游植物生长的极大促进作用。由于胶州湾主要为 P 限制或 Si 限制[53-54],根据 Redfield 定律,假设湿沉降带来的 PO_4-P 可以完全被浮游植物摄取和利用,以孙松等[11]得出的胶州湾夏、秋季初级生产力均值分别为 835.7 mg C m^{-2} d^{-1}和 247.8 mg C m^{-2} d^{-1}计算,则本研究中大气湿沉降所支持的新生产力在夏、秋季分别为 0.575 mg C m^{-2} d^{-1}和 1.42 mg C m^{-2} d^{-1},分别占胶州湾夏、秋季初级生产力的 0.07%和 0.57%。尽管大气湿沉降对胶州湾初级生产力的贡献有限,但考虑到降水本身的特性,特别是夏季突发性的强降雨带来的营养盐高强度输入会使表层海水的营养盐浓度迅速增加,从而促进浮游植物的大量繁殖。如 2003 年 6 月胶州湾东侧近岸出现的短暂初级生产力极高值(7 213.5 mg C m^{-2} d^{-1}),可能与一周前出现的一次强降雨有关[11]。此外,在 2004 年 7 月 11 日,胶州湾一天内降雨可达 49.5mm,雨水中 DIP 所支持的新生产力为 142.2 mg C m^{-2} d^{-1},可占夏季胶州湾海水中平均初级生产力的 17%[16]。在美国的 Chesapeake 湾,也发现极端天气带来的淡水输入可以显著改变浮游植物的现存量和空间分布格局[55]。相关研究发现,赤潮的爆发往往是在大雨过后不久发生的,与降水中较高含量的营养盐有关[56-57]。这都充分表明湿沉降输入的营养盐会对胶州湾浮游植物丰度以及初级生产力产生重要的影响。

本研究中,胶州湾降水中 DIN/P,Si/DIN 和 Si/P 分别为 1 617,0.001 和 0.90。DIN/P 分别为东海[15]和大亚湾[31]降水中 N/P 比值的 2.4 倍和 10 倍,远远高于 Redfield 比值和胶州湾水体中的 DIN/P,但 Si/N 和 Si/P 却远远低于水体中相应的比值[58],表明降水可能会在某种程度上改变胶州湾表层海水的营养盐结构。假设湿沉降带来的营养盐输入仅对海水表层 2 m 产生影响,以表 8 的数据为例,计算得出降水发生前胶州湾海水的 DIN/P、Si/N 比值分别为 72 和 0.32,降水发生后二者分别变为 76.8 和 0.30,可知夏、秋季降水对胶州湾表层海水的平均加富作用对表层海水的营养盐结构影响不大,但一次强降水过程如 7 月 31 日的短时大暴雨会使表层水体的 DIN/P、Si/N 比值分别改变为 84 和 0.27,表明湿沉降可在一定程度上加剧胶州湾表层水体的 P 限制或 Si 限制,与 Liu 等[54]的观点一致。长期的 N/P 比失衡可以导致甲藻类在浮游植物群落中的比例大幅上升[59-60]。由于甲藻主要优先摄取 NH_4-N,而湿沉降中以 NH_4-N 为主的营养盐结构势必会促进甲藻的繁殖和增长,相应的研究也发现,近年来胶州湾甲藻类群成为优势种的概率在不断增加[13],这表明由大气湿沉降带来的大量 NH_4-N 的输入以及 P 和 Si 的相对极度缺乏可能会引起胶州湾浮游植物优势种由硅藻到甲藻的演

替。如 2003 年以后,甲藻经常成为胶州湾夏季一些区域的优势种类,且甲藻的高值分布区呈现湾外向湾内蔓延的规律[13]。此外,由于微型和微微型浮游植物的生长更容易受到 NH_4-N 浓度的影响,而 NO_3-N 则可以促进小型浮游植物的生长。研究发现自 1998 年开始,胶州湾小型浮游植物所占比例下降,而微型浮游植物比例有所上升[61],这可能也与大气湿沉降中 NH_4-N 的比例较高有关。综上所述,大气湿沉降通过可以改变表层水体的营养盐结构进而对胶州湾的浮游植物群落结构、优势种演替以及粒级结构产生重要影响。

3 结论

(1)2015 年夏秋季胶州湾大气湿沉降 NH_4-N 和 NO_3-N 构成了 DIN 的主体,且各个月份中 NH_4-N 浓度均高于 NO_3-N,DON 含量占 DTN 的 25.9%,而 PO_4-P 和 SiO_3-Si 的浓度均很低,可能与调查期间二者的来源较少有关。胶州湾雨水中各项营养盐浓度具有显著的时间变化,均与降水量呈负相关关系,还与气溶胶中营养物质的来源和浓度有关。

(2)2015 年胶州湾 DIN,DON,PO_4-P 和 SiO_3-Si 的湿沉降通量分别为 141.7、61.87、0.35 mmol m^{-2} a^{-1} 和 0.12 mmol m^{-2} a^{-1},月际间变化显著。DIN 和 DON 大致构成 3∶1 的湿沉降格局,忽略 DON 将会严重低估胶州湾大气 N 湿沉降通量。NH_4-N 占全部 N 湿沉降通量的 48%,PO_4-P 和 SiO_3-Si 的湿沉降通量较低。与国内外其它海域相比,胶州湾的大气 N 湿沉降通量处于较高水平。

(3)相关性分析表明,除 DON 外,其它形式的 N 营养盐可能具有较为一致的来源,NH_4-N/NO_3-N 比值分析表明,农业生产导致的无机氮排放构成了胶州湾湿沉降 DIN 的主要来源。

(4)胶州湾大气湿沉降营养盐负荷与陆源输入相比较低,湿沉降可对表层海水的营养盐浓度产生一定的加富效应,可能引发水体富营养化。以 PO_4-P 计算,大气湿沉降所支持的新生产力分别占胶州湾夏、秋季初级生产力的 0.07%和 0.57%,短时强降雨带来的大量营养盐输入会对胶州湾浮游植物丰度及初级生产力产生重要影响。湿沉降中 DIN/P 比高达 1 617,而 Si/DIN 则低至 0.001,湿沉降带来的大量无机氮输入可在某种程度上改变表层水体的营养盐结构,加剧胶州湾表层水体的 P 限制或 Si 限制,并可能导致浮游植物优势种由硅藻到甲藻的演替,从而对浮游植物群落结构、优势种演替以及粒级结构产生重要影响。作为生源要素生物地球化学循环的重要一环,大气湿沉降对胶州湾生源要素收支的贡献及其引发的生态效应不容忽视。

参考文献(References):

[1] Song J M. Biogeochemical Processes of Biogenic Elements in China Marginal Seas. Heidelberg Berlin: Springer-Verlag GmbH, Hangzhou: Zhejiang University Press,2010:1-662.

[2] 高会旺, 姚小红, 郭志刚, 韩志伟, 高树基. 大气沉降对海洋初级生产过程与氮循环的影响研究进展. 地球科学进展, 2014, 29(12): 1325-1332.

[3] Zhang J. Atmospheric wet deposition of nutrient elements: correlation with harmful biological blooms in northwest Pacific coastal zones. Ambio, 1994, 23(8): 464-468.

[4] 付敏, 赵卫红, 王江涛, 苗辉. 大气湿沉降对长江口水域营养盐的贡献. 环境科学, 2008, 29(10): 2703-2709.

[5] Kim T W, Lee K, Najjar R G, Jeong H D, Jeong H J. Increasing N abundance in the northwestern Pacific Ocean due to atmospheric nitrogen deposition. Science, 2011, 334(6055): 505-509.

[6] Chen Y X, Chen H Y, Wang W, Yeh J X, Chou W C, Gong G C, Tsai F J, Huang S J, Lin C T. Dissolved organic nitrogen in wet deposition in a coastal city (Keelung) of the southern East China Sea: Origin, molecular composition and flux. Atmospheric Environment, 2015, 112: 20-31.

[7] 郑利霞, 刘学军, 张福锁. 大气有机氮沉降研究进展. 生态学报, 2007, 27(9): 3828-3834.

[8] Duce R A, Liss P S, Merrill J T, Atlas E L, Buat-menard P, Hicks B B, Miller J M, Prospero J M, Arimoto R, Church T M, Ellis W, Galloway J N, Hansen L, Jickells T D, Knap A H, Reinhardt K H, Schneider B, Soudine A, Tokos J J, Tsunogai S, Wollast R, Zhou M. The atmospheric input of trace species to the world ocean. Global Biogeochemical Cycles, 1991, 5(3): 193-259.

[9] He J, Balasubramanian R, Burger D F, Hicks K, Kuylenstierna J C I, Palani S. Dry and wet atmospheric deposition of nitrogen and phosphorus in Singapore. Atmospheric Environment, 2011, 45(16): 2760-2768.

[10] 刘昌岭, 陈洪涛, 任宏波, 张国森. 黄海及东海海域大气湿沉降(降水)中的营养元素. 海洋环境科学, 2003, 22(3): 26-30.

[11] 孙松, 张永山, 吴玉霖, 张光涛, 张芳, 蒲新明. 胶州湾初级生产力周年变化. 海洋与湖沼, 2005, 36(6): 481-486.
[12] 韩丽君, 朱玉梅, 刘素美, 张经, 李瑞环. 黄海千里岩岛大气湿沉降营养盐的研究. 中国环境科学, 2013, 33(7): 1174-1184.
[13] 孙松, 孙晓霞. 海湾生态系统的理论与实践——以胶州湾为例. 北京: 科学出版社, 2015. 179-235.
[14] 朱玉梅. 东、黄海大气沉降中营养盐的研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2011: 17-36.
[15] 朱玉梅, 刘素美. 东海大气湿沉降中营养盐的研究. 环境科学, 2011, 32(9): 2724-2731.
[16] 毕言锋. 中国东部沿海的大气营养盐干、湿沉降及其对海洋初级生产力的影响[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2006: 49-55.
[17] 姜晓璐. 东、黄海的大气干、湿沉降及其对海洋初级生产力的影响[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2009: 31-40.
[18] 赵卫红,王江涛. 大气湿沉降对营养盐向长江口输入及水域富营养化的影响. 海洋环境科学, 2007, 26(3): 208-210, 216-216.
[19] 樊敏玲, 王雪梅, 王茜, 林文实, 金辉. 珠江口横门大气氮、磷干湿沉降的初步研究. 热带海洋学报, 2010, 29(1): 51-56.
[20] 房增国, 赵秀芬. 青岛大气氮湿沉降动态变化. 水土保持学报, 2013, 27(1): 263-266.
[21] Ridame C, Guieu C. Saharan input of phosphate to the oligotrophic water of the open western Mediterranean Sea. Limnology and Oceanography, 2002, 47(3): 856-869.
[22] Vicars W C, Sickman J O, Ziemann P J. Atmospheric phosphorus deposition at a montane site: Size distribution, effects of wildfire, and ecological implications. Atmospheric environment, 2010, 44(24): 2813-2821.
[23] Migon C, Sandroni V. Phosphorus in rainwater: Partitioning inputs and impact on the surface coastal ocean. Limnology and Oceanography, 1999, 44(4): 1160-1165.
[24] Zhang J, Wu Y, Liu C L, Shen Z B, Zhang Y. Major components of aerosols in North China: desert region and the Yellow Sea in the spring and summer of 1995 and 1996. Journal of the Atmospheric Sciences, 2002, 59(9): 1515-1532.
[25] 王文兴, 刘红杰, 张婉华, 丁国安. 我国东部沿海地区酸雨来源研究. 中国环境科学, 1997, 17(5): 387-392.
[26] 张国森, 陈洪涛, 张经, 刘素美. 长江口地区大气湿沉降中营养盐的初步研究. 应用生态学报, 2003, 14(7): 1107-1111.
[27] 陈能汪, 洪华生, 肖健, 张珞平, 王吉苹. 九龙江流域大气氮干沉降. 生态学报, 2006, 26(8): 2602-2607.
[28] 艾东升, 郑祥民, 周立旻, 张国玉, 任少芳, 王永杰, 周鸿. 近 2 年上海市夏季降水地球化学特征研究. 环境科学, 2010, 31(9): 2002-2009.
[29] 陈瑾, 刘思言, 邓鉴峰, 陈中颖, 卢平, 李来胜. 惠州大亚湾大气湿沉降中氮营养盐变化特征的研究. 华南师范大学学报: 自然科学版, 2014, 46(4): 70-75.
[30] Jung J, Furutani H, Uematsu M. Atmospheric inorganic nitrogen in marine aerosol and precipitation and its deposition to the North and South Pacific Oceans. Journal of Atmospheric Chemistry, 2011, 68(2):157-181.
[31] 陈瑾, 卢平, 陈中颖, 严惠华, 李来胜. 惠州大亚湾春夏季大气氮磷沉降的研究. 热带海洋学报, 2014, 33(2): 109-114.
[32] Gao Y. Atmospheric nitrogen deposition to Barnegat Bay. Atmospheric Environment, 2002, 36(38): 5783-5794.
[33] Violaki K, Zarbas P, Mihalopoulos N. Long-term measurements of dissolved organic nitrogen (DON) in atmospheric deposition in the Eastern Mediterranean: Fluxes, origin and biogeochemical implications. Marine Chemistry, 2010, 120(1/4): 179-186.
[34] Cornell S E, Jickells T D, Cape J N, Rowland A P, Duce R A. Organic nitrogen deposition on land and coastal environments: a review of methods and data. Atmospheric Environment, 2003, 37(16): 2173-2191.
[35] 刘冬碧, 张小勇, 巴瑞先, 刘毅, 范先鹏, 张富林, 熊桂云. 鄂西北丹江口库区大气氮沉降. 生态学报, 2015, 35(10): 3419-3427.
[36] 石金辉, 高会旺, 张经. 大气有机氮沉降及其对海洋生态系统的影响. 地球科学进展, 2006, 21(7): 721-729.
[37] Whitall D, Hendrickson B, Paerl H. Importance of atmospherically deposited nitrogen to the annual nitrogen budget of the Neuse River estuary, North Carolina. Environment International, 2003, 29(2/3): 393-399.
[38] Chen H Y, Chen L D. Importance of anthropogenic inputs and continental—derived dust for the distribution and flux of water-soluble nitrogen and phosphorus species in aerosol within the atmosphere over the East China Sea. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2008, 113(D11), doi: 10.1029/2007JD009491.
[39] Strayer H, Smith R, Mizak C, Poor N. Influence of air mass origin on the wet deposition of nitrogen to Tampa Bay, Florida—An eight-year study. Atmospheric Environment, 2007, 41(20): 4310-4322.
[40] Xie Y X, Xiong Z Q, Xing G X, Yan X Y, Shi S L, Sun G Q, Zhu Z L. Source of nitrogen in wet deposition to a rice agroecosystem at Tai lake region. Atmospheric Environment, 2008, 42(21): 5182-5192.
[41] 杨南南. 2012-2013 年胶州湾溶解有机氮的陆源输入、时空分布和生物可利用性研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014: 32-39.
[42] 王刚. 胶州湾入海点源、海水养殖污染物通量研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2009: 26-32.
[43] 刘洁, 郭占荣, 袁晓婕, 章斌, 马志勇. 胶州湾周边河流溶解态营养盐的时空变化及入海通量. 环境化学, 2014, 33(2): 262-268.
[44] 王伟. 强降雨对胶州湾生源要素的补充作用及浮游植物丰度和种群结构的影响[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2013: 33-39.
[45] 杜俊民, 陈立奇, 张远辉, 林奇, 杨绪林, 孙霞, 李伟. 台风“碧利斯”在厦门海域的酸沉降特征及其氮、磷营养盐对海洋的输入评估. 台

湾海峡, 2008, 27(3): 339-346.
[46] 宋金明, 李鹏程, 詹滨秋. 热带西太平洋定点海域(4°S156°E)营养盐变化规律及降水对海水营养物质影响的研究. 海洋科学集刊, 1997, 38(1): 133-141.
[47] 王小治, 尹微琴, 单玉华, 封克, 朱建国. 太湖地区湿沉降中氮磷输入量——以常熟生态站为例. 应用生态学报, 2009, 20(10): 2487-2492.
[48] 康美华. 胶州湾生源要素的时空分布特征研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014: 17-20.
[49] 丁东生, 石晓勇, 曲克明, 李克强, 崔正国. 2008 年秋季胶州湾两航次生源要素的分布特征及其来源初步探讨. 海洋科学, 2013, 37(1): 35-41.
[50] Zhang J, Liu M G. Observations on nutrient elements and sulphate in atmospheric wet depositions over the Northwest Pacific coastal oceans—Yellow Sea. Marine chemistry, 1994, 47(2): 173-189.
[51] Zou L, Chen H T, Zhang J. Experimental examination of the effects of atmospheric wet deposition on primary production in the Yellow Sea. Journal of Experimental Marine Biology and Ecology, 2000, 249(1): 111-121.
[52] Zhang G S, Zhang J, Liu S M. Characterization of nutrients in the atmospheric wet and dry deposition observed at the two monitoring sites over Yellow Sea and East China Sea. Journal of Atmospheric Chemistry, 2007, 57(1): 41-57.
[53] 张哲, 王江涛. 胶州湾营养盐研究概述. 海洋科学, 2009, 33(11): 90-94.
[54] Liu S M, Zhang J, Chen H T, Zhang G S. Factors influencing nutrient dynamics in the eutrophic Jiaozhou Bay, North China. Progress in Oceanography, 2005, 66(1): 66-85.
[55] Roman M, Zhang X, McGilliard C, Boicourt W. Seasonal and annual variability in the spatial patterns of plankton biomass in Chesapeake Bay. Limnology and Oceanography, 2005, 50(2): 480-492.
[56] Paerl H W. Enhancement of marine primary production by nitrogen-enriched acid rain. Nature, 1985. 315(6022): 747-749.
[57] 霍文毅, 俞志明, 邹景忠, 宋秀贤, 郝建华. 胶州湾中肋骨条藻赤潮与环境因子的关系. 海洋与湖沼, 2001, 32(3): 311-318.
[58] 孙晓霞, 孙松, 赵增霞, 沈志良. 胶州湾营养盐浓度与结构的长期变化. 海洋与湖沼, 2011, 42(5): 662-669.
[59] Zhou M J, Shen Z L, Yu R C. Responses of a coastal phytoplankton community to increased nutrient input from the Changjiang(Yangtze) River. Continental Shelf Research, 2008, 28(12): 1483-1489.
[60] 李云, 李道季, 唐静亮, 王益鸣, 刘志刚, 丁平兴, 何松琴. 长江口及毗邻海域浮游植物的分布与变化. 环境科学, 2007, 28(4): 719-729.
[61] 孙晓霞, 孙松. 胶州湾浮游植物粒级结构及其时空变化. 海洋与湖沼, 2012, 43(3): 411-418.